### **FUEL CELL GENERATING SET**

Publication number: JP10208757 (A) **Publication date:** 1998-08-07

Inventor(s):

MIYATA YASUSHI +

Applicant(s):

FUJI ELECTRIC CO LTD +

Classification: - international:

H01M4/90; H01M8/02; H01M8/04; H01M4/90; H01M8/02; H01M8/04; (IPC1-

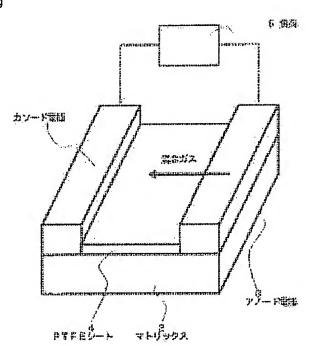
7): H01M4/90; H01M8/02; H01M8/04

- European:

Application number: JP19970007081 19970120 Priority number(s): JP19970007081 19970120

#### Abstract of JP 10208757 (A)

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a fuel cell which supplies electric energy by directly introducing a mixed fluid in which an oxidizing agent and a reducing agent are mixed and for which industrial exhaust gases and waste liquids can be used. SOLUTION: A matrix 2 retaining phosphoric acid is installed adjacently to a cathode 1 produced by forming a gas diffusion electrode from gold active only to an oxidizing agent fluid and PTFE (polytetrafluoroethylene) and impregnating the electrode with phosphoric acid and to an anode 3 produced by forming a gas diffusion electrode from tin active only to a reducing agent fluid and PTFE and impregnating the electrode with phosphoric acid, and a mixed fluid of the oxidizing agent fluid and the reducing agent fluid is introduced to obtain electric energy between the cathode 1 and the anode 3.



Data supplied from the espacenet database — Worldwide

# (19)日本国特許庁 (JP) (12) 公開特許公報 (A)

#### (11)特許出願公開番号

## 特開平10-208757

(43)公開日 平成10年(1998)8月7日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>		識別記号	FΙ			
H01M	8/02		H 0 1 M	8/02	E	
	4/90			4/90	M	
	8/04			8/04	Z	

#### 審査請求 未請求 請求項の数5 OL (全 6 頁)

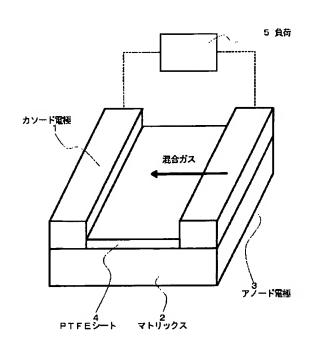
000005234		
富士電機株式会社 神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号		
宮田 康史 神奈川県川崎市川崎区田辺新田1番1号		
富士電機株式会社内		
、 弁理士 篠部 正治		
•		

#### (54) 【発明の名称】 燃料電池発電装置

#### (57)【要約】

【課題】酸化剤と還元剤が混在する混合流体を直接導入 して電気エネルギーが取り出され、産業排ガスや廃液な どの利用が可能となる燃料電池を得る。

【解決手段】酸化剤流体にのみ活性を有する金とPTF Eとを用いてガス拡散電極に形成しリン酸を含浸してな るカソード電極1と、還元剤流体にのみ活性を有するス ズとPTFEとを用いてガス拡散電極に形成しリン酸を 含浸してなるアノード電極3とに接して、リン酸を保持 したマトリックス2を配し、酸化剤流体と還元剤流体の 混合流体を導入して、カソード電極1とアノード電極3 との間に電気エネルギーを得る。



#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】電解質を保持したマトリックスを、酸化剤流体にのみ活性を有する触媒を備えたカソード電極と、還元剤流体にのみ活性を有する触媒を備えたアノード電極とに接触配設して単セルを形成し、これを複数個直列に導電接続して燃料電池集合体を構成し、酸化剤流体と還元剤流体との混合流体を導入して、電気化学反応により電気エネルギーを得ることを特徴とする燃料電池発電装置。

【請求項2】請求項1に記載の燃料電池発電装置において、前記のカソード電極に備える触媒が、金、または銀、あるいはこれらのうちの少なくとも一つと他の元素との合金よりなることを特徴とする燃料電池発電装置。 【請求項3】請求項1または2に記載の燃料電池発電装置において、前記のアノード電極に備える触媒が、スズ、あるいはスズと他の元素との合金よりなることを特徴とする燃料電池発電装置。

【請求項4】請求項1、2または3に記載の燃料電池発電装置において、前記の混合流体が、酸素とアルコールとの混合体よりなることを特徴とする燃料電池発電装

$$H_2 \rightarrow 2H^+ + 2e^-$$
  
 $2H^+ + (1/2)O_2 + 2e^-$ 

アノード電極3に送られる水素ガスは、天然ガスやメタノール等を改質して作られ、カソード電極1に送られる酸素ガスには、空気中の酸素が用いられる。電解質には種々の物質が使用され、その種類によって、水酸化カリウムを用いるアルカリ型燃料電池、りん酸を用いるりん酸型燃料電池、溶融炭酸塩を用いる溶融炭酸塩型燃料電池、セラミックスを用いる固体電解質型燃料電池、高分

$$H_2 + (1/2)O_2 \rightarrow H_2 O$$

の反応が生じ、電気化学反応の分極が増大して、燃料電池特性は低下する。図6は、従来より用いられているりん酸型燃料電池のセル電圧に対する水素ガスと酸素ガスの混合の影響を示す特性図である。図において、(1)で示した特性は純水素と空気を混合することなくそれぞれの電極へ供給した場合の特性である。これに対して、(2)はアノード電極に供給する水素ガスに空気が10%混入した場合の特性、また、(3)はカソード電極に供給する空気に水素が10%混入した場合の特性である。酸化剤ガスと還元剤ガスを混合した場合には、いずれも電池特性が大幅に低下していることがわかる。したがって、従来の燃料電池では、これらのガスをそれぞれ別々に分離して供給している。

【0005】なお、C.K.Dyer (Nature, Vol.343, p547 (1990))により、酸化剤ガスと還元剤ガスとの混合ガスを用いて発電する方式の装置が報告されているが、この装置は、基板の上にガス透過性の特殊材料よりなるサブミクロンの薄膜を形成し、混合ガス中に設置して、薄膜の下面と上面に備えた二つの電極間に電圧を得るもので、出力は、発電条件によって異なるが、1~5 [mW/cm

置。

【請求項5】請求項1、2、3または4に記載の燃料電 池発電装置において、前記の電解質がりん酸であること を特徴とする燃料電池発電装置。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、酸化剤流体と還元 剤流体との混合流体を導入して電気エネルギーを取り出 す燃料電池発電装置に関する。

[0002]

【従来の技術】図5は、従来より用いられている燃料電池の原理を示す模式図である。図に見られるように、燃料電池は、電解質を保持するマトリックス2と、これを挟むカソード電極1、ならびにアノード電極3を基本構成要素として構成されており、二つの電極に、外部からそれぞれ水素ガスと酸素ガスとを供給して、各電極の触媒上で以下のごとき電気化学反応を起こさせて直流の電気を発生させるものである。

[0003]

【化1】

(1)

 $\rightarrow$  H, O (2)

子膜を用いる固体高分子型燃料電池がある。これらのいずれの燃料電池においても、それぞれの電極に水素ガスと酸素ガスを別々に供給して、発電が行われる。供給する水素ガスと酸素ガスとが混合すると、いずれかの電極において、

[0004]

【化2】

(3)

2]と極めて低い。これは作動温度が室温であるため電極の分極が非常に高いからである。なお、この装置は、大電力を得る装置としては不向きで、小型、軽量で高出力密度を必要とする用途への適用が期待されている。

[0006]

【発明が解決しようとする課題】上記のように、小型の特殊な装置として、実験室レベルでの酸化剤ガスと還元剤ガスとの混合ガスを用いた燃料電池の研究も行われているが、一般の従来の方式の燃料電池では、酸化剤ガスと還元剤ガスを分離して用いなければならないので、これらを完全に分離させる構成とするために燃料電池の構造が必然的に複雑となるという難点がある。

【0007】また、燃料電池発電装置に複数の種類のガスや液体が混合している産業排ガスや廃液などを利用し、有効活用しようとすると、従来の方式の燃料電池ではガスや液体の分離精製のために非常に複雑な装置を必要となるので、コストが高くなり、さらに、投入エネルギーが増大し、取り出されるエネルギーを超える可能性が高く、エネルギー収支の上でも現実性が乏しくなるという問題点がある。

還元剤流体との混合流体、例えば、酸素とアルコールと の混合体よりなる混合流体を導入して、電気化学反応に

【0010】図7は、上記のごとき触媒を備えた燃料電

池発電装置において、酸化剤ガスと還元剤ガスとの混合 ガスを供給した場合の発電原理を示す模式図である。ア

ノード電極に備えたα触媒11においては、還元剤ガス

し、電子(e<sup>-</sup>)は外部回路を通りカソード電極に達す る。なお、 $\alpha$ 触媒 1 1 は酸化剤ガス (B-O) に対して

活性を持たないので、酸化剤ガス(B-O)は化学反応

H)に対して活性をもたないので、還元剤ガス(A-

H) は化学反応を起こさない。

(A-H)が下記の式(4)のごとき触媒反応を生じ

て、電解質を保持するマトリックス10にH<sup>+</sup>を供給

より電気エネルギーを得ることとする。

【0008】この発明の目的は、上記のごとき従来技術 の難点を解消して、構成が簡単で、酸化剤と還元剤が混 在する混合流体を直接導入して電気エネルギーが取り出 され、産業排ガスや廃液などの利用が可能となる燃料電 池発電装置を提供することにある。

#### [0009]

【課題を解決するための手段】上記の目的を達成するた めに、本発明においては、電解質、例えば、りん酸を保 持したマトリックスを、酸化剤流体にのみ活性を有する 触媒、例えば、金、または銀、あるいはこれらのうちの 少なくとも一つと他の元素との合金よりなる触媒を備え たカソード電極と、還元剤流体にのみ活性を有する触 媒、例えば、スズ、あるいはスズと他の元素との合金よ りなる触媒を備えたアノード電極とに、接触配設して単 セルを形成し、これを複数個直列に導電接続して燃料電 池発電装置の燃料電池集合体を構成して、酸化剤流体と

$$\alpha \text{ fight } (A-H) \rightarrow H^+ + e^- + A$$
 (4)

一方、カソード電極に備えたβ触媒12においては、酸 化剤ガス (B-O) が式 (5) のごとき触媒反応を起こ して水を生成する。式(5)に見られるH<sup>+</sup> はマトリッ クス10から供給され、また電子(e<sup>-</sup>)は外部回路よ

[0012] 【化4】 り供給される。なお、β触媒12は還元剤ガス (A-

(5) β触媒 ;  $(B-O) + 2H^{+} + 2e^{-} → H_{2} O + B$ したがって、両電極での反応をまとめると、 【化5】

[0013]

$$2(A-H) + (B-O) \rightarrow 2A+B+H_2O$$
 (6)

の反応が起こり、外部回路を通して電気エネルギーが得 られることとなる。β触媒12として、金、または銀、 あるいはこれらのうちの少なくとも一つと他の元素との 合金よりなる触媒を、また、 $\alpha$ 触媒11として、スズ、 あるいはスズと他の元素との合金よりなる触媒を用い、

酸素とエタノールとの混合体よりなる混合流体を導入す れば、

[0014] 【化6】

を起こさない。

[0011]

【化3】

カソード電極; (1/2)O<sub>2</sub> + 2 H<sup>+</sup> + 2 e<sup>-</sup> → H<sub>2</sub> O (7) アノード電極: CH<sub>3</sub> OH → HCHO+2H<sup>1</sup> +2e<sup>-</sup> (8)

電池全体 ; CH<sub>3</sub> OH+ (1/2)O<sub>2</sub> →HCHO+H<sub>2</sub> O

となり、外部回路を通じて電気エネルギーが得られる。 [0015]

【発明の実施の形態】図1は、本発明による燃料電池発 電装置の実施例を示す単セルの基本構成図である。方形 板状の多孔性のマトリックス2には電解質のりん酸が保 持されている。カソード電極1は、触媒金属の金とポリ テトラフルオロエチレン (PTFE) とを用いてガス拡 散電極に成形したもので、電解質であるりん酸が含浸さ れている。アノード電極3は、同様に触媒金属のスズと ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)とを用いてガ ス拡散電極に成形したもので、同じく電解質であるりん 酸が含浸されている。二つの電極間の距離が短いほどプ ロトン抵抗が減少し、特性が向上するので、両電極は近 接して配置されている。なお、両電極間のマトリックス 2の上面には、マトリックス 2からのりん酸の蒸発を抑 制する役割を果たすPTFEシート4が配されている。

【0016】本構成において、図示したようにカソード 電極1とアノード電極3に面して混合ガスを通流させれ ば(図においてはアノード電極3の側からカソード電極 1の側へと混合ガスを流すよう表示しているが、カソー ド電極1の側からアノード電極3の側へと流すこととし ても特に効果に差異はない)、電気化学反応が生じて両 電極の間に接続された負荷5に直流電流が流れることと なる。しかしながら、1個の単電池に生じる電圧は1V に満たない低い電圧であるので、実用に供する場合に は、多数の単セルを直列に導電接続して発生電圧を高く する方式が用いられている。

(9)

【0017】図2は、上記構成の単セルを直列に導電接 続する構成例を示す模式図である。図1のごとくマトリ ックス2の上の両側端にカソード電極1とアノード電極 3を配して構成された複数の単セル7を、気密性を備え た電気絶縁性材料よりなるセパレータ6を介在させて配 置し、互いに近接するカソード電極1とアノード電極3とを導電接続して、直列導電接続体が構成されている。 セパレータ6は、それぞれの単セル7で所定のセル電圧が得られるように、隣接する単セル7の電解質を分離する役割を果している。

【0018】図3は、図1の構成よりなる5個の単セルを図2のごとく接続した直列導電接続体について実施した特性試験の基本構成を示す模式図である。5個の単セル7は、混合ガス通気管8の下部に設けられた電池収納部9に両電極を上部にして配設されており、各単セル7の間にセパレータ6Aを介在させ、直列に導電接続して配されている。また、130℃のメタノールと空気との混合体が酸化剤流体と還元剤流体との混合流体として用いられており、混合ガス通気管8の一端に設けられた図示しない混合ガス導入口より導入され、5個の単セルの上面を通流させて電気化学反応に用いたのち、残余のガスは混合ガス通気管8の他端より排出されるよう構成されている。

【0019】図4は、上記の特性試験により得られたセ ル電圧一電流密度特性を示す特性図で、1個の代表的な 単セル7の特性を例示したものである。図に見られるよ うに、限界電流密度は約 0.9[A/cm²] 、また、電流密度 0.4[A/cm²] におけるセル電圧は約 0.6Vの良好な特性 を備えている。これらの特性は、図6に示した従来例の 10 %混合ガス供給時の特性を大幅に上回るものであ り、カソード電極1に用いる触媒金属として酸化剤ガス の空気にのみ活性を有する金を、またアノード電極3に 用いる触媒金属として還元剤ガスのメタノールにのみ活 性を有するスズを採用したことにより、これらの混合流 体を用いて良好な特性を備える電池が得られることが明 らかとなった。また、上記の特性は、図6に示した従来 例の(1) の特性、すなわち酸化剤ガスと還元剤ガスを個 別にそれぞれの電極に供給する方式の電池の特性に比較 すると若干劣っているが、従来例の構成では酸化剤ガス と還元剤ガスをそれぞれ気密に保持して個別に制御する 必要があるのに対して、本実施例の構成では酸化剤と還 元剤が混在する混合流体を供給すればよいので、簡単な セル構成と簡単な混合流体の供給、制御系により電気エ ネルギーが取り出されるという利点がある。したがっ て、酸化剤と還元剤が混在する産業排ガスや廃液などを 燃料電池に利用することが可能となる。

【0020】なお、本実施例においては、酸化剤流体の空気と還元剤流体のメタノールとの混合流体を用いることとしているが、電池に供給する混合流体はこれに限るものではなく、酸化剤ガスあるいは酸化剤液体と、還元剤ガスあるいは還元剤液体との混合流体であればよい。また、カソード電極1の触媒に用いる酸化剤流体にのみ活性を有する触媒金属として金を用いているが、同様の特性を備えた銀でもよく、またこれらのうちの少なくとも一つと他の元素との合金よりなる触媒を用いることと

しても同様の効果が得られる。また、アノード電極3の 触媒に用いる還元剤流体にのみ活性を有する触媒金属と してスズを用いているが、同様の特性を備えたスズと他 の元素との合金よりなる触媒を用いることとしても同様 の効果が得られる。

#### [0021]

【発明の効果】上述のように、本発明によれば、電解 質、例えば、りん酸を保持したマトリックスを、酸化剤 流体にのみ活性を有する触媒、例えば、金、または銀、 あるいはこれらのうちの少なくとも一つと他の元素との 合金よりなる触媒を備えたカソード電極と、還元剤流体 にのみ活性を有する触媒、例えば、スズ、あるいはスズ と他の元素との合金よりなる触媒を備えたアノード電極 とに接触配設して単セルを形成し、これを複数個直列に 導電接続して燃料電池集合体を構成する燃料電池発電装 置において、酸化剤流体と還元剤流体との混合流体、例 えば、酸素とアルコールとの混合体よりなる混合流体を 導入して、電気化学反応により電気エネルギーを得るこ ととしたので、簡単な構成で、酸化剤と還元剤が混在す る混合流体を直接導入して電気エネルギーを取り出すこ とができることとなり、産業排ガスや廃液などの利用が 可能となる燃料電池発電装置が得られることとなった。 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明による燃料電池発電装置の実施例を示す 単セルの基本構成図

【図2】図1の構成の単セルを直列に導電接続する構成 例を示す模式図

【図3】図1の構成よりなる5個の単セルを直列導電接続して実施した特性試験の基本構成を示す模式図

【図4】図3の構成の特性試験により得られたセルの特性を示す特性図

【図5】従来より用いられている燃料電池の原理を示す 模式図

【図6】従来より用いられているりん酸型燃料電池のセル電圧に対する水素ガスと酸素ガスの混合の影響を示す特性図

【図7】本発明の燃料電池発電装置の発電原理を示す模式図

#### 【符号の説明】

- 1 カソード電極
- 2 マトリックス
- 3 アノード電極
- 4 PTFEシート
- 5 負荷
- 6 セパレータ
- 6A セパレータ
- 7 単セル
- 8 混合ガス通気管
- 9 電池収納部

